

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公表特許公報 (A)

(11) 特許出願公表番号

特表2000-512797

(P2000-512797A)

(43) 公表日 平成12年9月28日 (2000.9.26)

(51) Int. Cl.

H01M 8/04

識別記号

F I

H01M 8/04

テマコード\* (参考)

F

審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 17 頁)

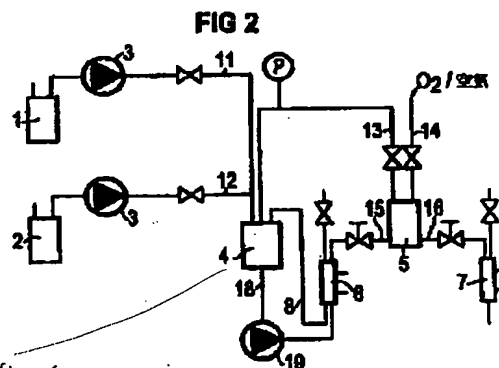
(21) 出願番号 特願平10-502109  
(86) (22) 出願日 平成9年6月25日 (1997.6.25)  
(85) 翻訳文提出日 平成10年12月25日 (1998.12.25)  
(86) 国際出願番号 PCT/DE97/01320  
(87) 国際公開番号 WO97/50140  
(87) 国際公開日 平成9年12月31日 (1997.12.31)  
(31) 優先権主張番号 19625621.6  
(32) 優先日 平成8年6月26日 (1996.6.26)  
(33) 優先権主張国 ドイツ (DE)  
(81) 指定国 EP (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), CA, JP, NO, US

(71) 出願人 シーメンス アクチエンゲゼルシャフト  
ドイツ連邦共和国 D-80333 ミュンヘン  
ヴィッテルスバッハープラッツ 2  
(72) 発明者 ギュンター ルフト  
ドイツ連邦共和国 D-91207 ラウフリンデンシュトラッセ 4  
(72) 発明者 クルト バンテル  
ドイツ連邦共和国 D-90562 ヘーホルツベルク  
ハウプトシュトラッセ 21  
(72) 発明者 マンフレート ヴァイダス  
ドイツ連邦共和国 D-90427 ニュルンベルク  
シュニークリンガー シュトラッセ 285  
(74) 代理人 弁理士 矢野 敏雄 (外3名)

(54) 【発明の名称】 直接メタノール燃料電池 (DMFC)

(57) 【要約】

本発明は、電池の前に蒸発器が接続された、DMFCに関する。場合によっては不活性ガスの添加物を含む主としてメタノール/水混合物である燃料は、その組成において可変であり、その際、それぞれのメタノール/水及び場合によっては不活性ガス-混合物は、負荷に依存して調節可能である。さらに本発明は、燃料がガス状でアノード空間に存在するDMFCの動作方法に関する。



蒸発器で供給

BEST AVAILABLE COPY

## 【特許請求の範囲】

1. 燃料及び酸化剤のためのそれぞれ1つの供給ー及び放出通路、ダイヤフラムー電極ーユニット、及びバイポーラ板を含み、その際、燃料電池のアノードにおける反応の際に燃料がガス状になって存在し、かつ湿らせるための水がアノード側に持込まれるように、燃料のための供給通路の前に、蒸発器が接続されており、その際、燃料内において、メタノール、水及び／又は不活性ガスの濃度が負荷に依存して調節可能である、直接ーメタノールー燃料電池。
2. 湿度が70%より高い、請求項1に記載の直接ーメタノールー燃料電池。
3. 請求項1又は2に記載の燃料電池からなる電池積層体、蒸発器及び場合によっては燃料の供給導管における3つまでのポンプ、及び燃料排気ガスの放出導管内において二酸化炭素ー分離器又は熱交換器を含み、その際、最後に挙げたものにおいて、消費されない燃料が、反応生成物、二酸化炭素から物理的又は化学的に分離することができる、燃料電池装置。
4. 燃料のため及び反応生成物、二酸化炭素のために、アノード循環路の導管が設けられている、請求項3に記載の燃料電池装置。
5. 燃料を、アノードにガス状にして供給し、かつ燃料中におけるメタノール、水及び／又は不活性ガスの濃度を、負荷に依存して調節する、直接ーメタノールー燃料電池装置の動作方法。
6. 燃料電池から消費されずに流出する燃料を、前の凝縮の後に、かつ／又は生じた二酸化炭素を、再びアノードへの供給導管内に供給する、請求項5に記載の直接ーメタノールー燃料電池装置の動作方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 直接-メタノール-燃料電池 (DMFC)

本発明は、高い電圧-及びファラデー効率を有する、直接-メタノール-燃料電池 (DMFC)、複数のDMFCからなる装置、及びDMFC-装置の動作方法に関する。

1922年以来、DMFCの基本原理は周知であり、これまで研究は、液状燃料によるDMFCの動作に集中している。燃料としてDMFCにおいてメタノールが取り上げられ、以前にはまだぎ酸、フォルムアルデヒド又は高鎖アルコールのようなメタノールの代用品が、燃料として吟味されていた。その際、メタノールの利用は、最大の技術的な意味を有し、それ故に名称、DMFCも広く普及している。液状燃料によるDMFCの動作は、比較的低い温度で行なわれ、かつメタノールの反応が比較的粗悪な電圧効率で行なわれ、しかもアノード反応の動力学的な減速に基いて行なわれるという欠点を有する。

日本特許第22;34359号明細書によれば、蒸気状メタノールの反応が公知である。その際、水は、ダイヤフラムを湿らすために、かつ反応  $[\text{CH}_3\text{OH} + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{CO}_2 + 6\text{H}^+ + 6\text{e}^-]$  の経過のために、分離して裏側に (したがってカソード側に) 供給され

る。カソード側における水の供給は、さらに大きな電流密度の際に、電流に比例する電気浸透の水送りがダイヤフラムを通る水拡散に抗するように作用するという欠点を有する。このことは、ダイヤフラムを追加的な水によって湿らせて維持しなければならないので、水消費量の増加を引起す。さらにこの従来の技術における水の計量供給は、負荷に依存して行なわれない。

DMFCの実現の際の一般的な問題は、いぜんとして燃料-メタノールが反応も行なうカソードへの電解質を通したこの燃料-メタノールの拡散である。その結果は、燃料の損失 (ファラデー効率の低下) とともに、電池電圧の減少 (電圧効率の低下) である。

それ故に本発明の課題は、大きな電流密度の際に高い電圧-及びファラデー効率を実現する、燃料電池及び燃料電池装置、及び装置の動作方法を提供すること

にある。加えて本発明の課題は、電池内におけるわずかな電気浸透水損失及びポリマー電解質を通したできるだけわずかな水送りによって動作する、燃料電池、燃料電池装置、及び燃料電池の動作方法を提供することにある。

ファラデー効率とは、実際にアノードにおいてどの程度のパーセントまで燃料が反応したかを表わすエネルギー利用度のことである。

電圧効率とは、電流負荷をかけた電池電圧と熱力学

的な不動作電圧との間の比を表わす。

本発明の一般的な知識は、次のとおりである。すなわち

－第1に、ファラデー効率の上昇は、メタノールを負荷に依存して供給し、かつ相応してアノード空間内において消費するとき、電池内におけるメタノール拡散の最少化によって可能である。この時、これは、カソードへの大きな拡散圧力が生じるほど高い濃度では存在しない。

－第2に、本発明は、アノード反応の動力学的な減速の最少化に通じるので、動作温度の上昇によって電圧効率を改善することができるという知識に基付いている。その上ファラデー効率は、低い電流密度の際に反応物質の負荷に依存した供給によっても上昇する。

－第3に、ポリマー電解質を通したあまりに多くの水送りの問題は、二酸化炭素及び/又は窒素のような不活性ガスを添加することによって減少することができる。なぜならそれによりDMFCのアノード側における含水量が低下し、かつカソードにわずかな水しか送られないからである。

それ故に本発明の対象は、燃料及び酸化剤のためのそれぞれ1つの供給－及び放出通路、ダイヤフラム－電極－ユニット、及びバイポーラ板を含み、その際、燃料電池のアノードにおける反応の際に燃料がガス状になって存在するようにし、燃料のための供給通路の

前に、蒸発器が接続されている、DMFCである。さらに本発明の対象は、本発明による燃料電池からなる電池積層体、蒸発器及び場合によっては燃料の供給導管における3つまでのポンプ（メタノール及び水のための2つの計量ポンプ、及

び循環路内に案内するCO<sub>2</sub>ガスを再び必要な過圧にする1つのポンプ)、及び燃料の放出導管内においてCO<sub>2</sub>-分離器を含み、その際、最後に挙げたもの、すなわち燃料電池積層体の後に接続されたCO<sub>2</sub>-分離器において、ガス状燃料の凝縮物が、熱的に又はその他の方法で二酸化炭素から分離可能である、燃料電池装置である。

さらに本発明の対象は、少なくともメタノールと水からなる燃料を、アノードにガス状にして供給する、DMFC-装置の動作方法である。本発明のその他の有利な構成は、特許請求の範囲従属請求項、及び明細書、図面の説明及び図面自体に含まれている。

本発明による燃料電池の燃料は、メタノールから、又は水とメタノールからなる任意の混合物からなることができる。燃料が、水とメタノールからなる任意の混合物からなる場合、蒸発器の前に接続された計量ポンプを介して、メタノール又は水の濃度を負荷に依存して調節可能にすることができる。その際、燃料は、可変の圧力によって燃料電池内に導入することができ、かつこれにCO<sub>2</sub>、N<sub>2</sub>、アルゴン等のような任意の量の不活性担体ガスを添加することができる。

燃料電池の有利な構成は、メタノール/水混合物に例えば二酸化炭素及び/又は窒素等のような不活性ガスを添加混合することを考慮している。それによりDMFCのアノード側における含水量が減少し、かつポリマー電解質を介してカソード側へわずかな水しか送られない。

湿度  $x_f = V_{aH} / V_n$  [ $V_{aH}$  = 通常条件における水蒸気容積;  $V_n$  = 通常条件における総容積] は、不活性ガスによって任意に調節することができる。70%以上、有利に80と90%の間の湿度が有利とわかった。なぜならこの時、ポリマーダイヤフラムは、まだ完全に乾燥していないからである。ガス送りのためのエネルギー消費量をできるだけわずかに保つために、湿度はできるだけ高くなる。湿度は、DMFCの動作温度にも依存している。これが高いほど、湿度も高くしなければならない。なぜならダイヤフラムにおける含水量は、100℃以上の温度において急速に低下するからである。湿度  $x_f$  (容積に対する) は、次のように定義される:

$$x_f = V_{nH} / V_n = V_{nH} / (V_{nH} + V_{nL}) = p_H / p$$

$V_{nL}$  = 通常条件における乾燥ガス容積、すなわち不活性ガス添加物を含む又は含まないガス状のメタノール；

$p_H$  = 水蒸気分圧

$p$  = 総合圧力

本発明による燃料電池装置は、有利に本発明による燃料電池からなる電池積層体からなるが、種々の様式の燃料電池から組合わせて構成してもよい。その際、蒸発器、及び場合によっては負荷に依存して燃料又は水を供給する1つまたは2つの計量ポンプは、電池積層体への燃料の供給導管内に統合されている。

アノード循環路内において $CO_2$ 一分離器において、生じた $CO_2$ は、消費されなかったメタノールを豊富に含んだ排気ガスから分離される。この時、排気ガスは、凝縮された形で存在し、かつ循環路に供給することができ、すなわち蒸発器内に導入することができる。さらに分離された二酸化炭素の一部は、不活性ガスの添加量をも制御する過圧ポンプを介して、同様に循環路に供給することができる。

アノード循環路とは、それぞれ不活性ガスを含む又は含まない燃料メタノール又はメタノール/水混合物が循環路状に閉じたシステムにおいてアノードのそばを通ることを表わしており、その際、追加的な燃料は、必要な場合にシステムに供給され、かつガス状の反応生成物は、システムから分離される。

燃料排気ガスに含まれた消費されなかった燃料は、まず熱交換によって凝縮され、又は冷却され、かつそれから再び供給導管に又は蒸発器に導入される。その際、もちろん蒸発器における水/メタノールへの供給

を制御する計量ポンプの負荷に依存した制御は、排気ガスからの供給導管を通る蒸発器内におけるメタノール/水混合物の濃度変化を考慮するように構成しなければならない。

燃料排気ガスからの消費されなかった燃料は、熱交換器又は $CO_2$ 一分離器において含まれた二酸化炭素から物理的に又は場合によっては化学的に分離される

。その際、物理的な分離とは、物質の種々の物理的特性（密度、沸点等のような）を介して分離が行なわれることを表わしている。化学的な分離も考えられ、かつCO<sub>2</sub>が化学的に結合されて、例えばカルボナートとして沈澱させられることを表わしている（生じたカルボナートの大きな質量のためにあまりエネルギー的に重要ではないが、代案の化学的方法を議論することができる）。

直接メタノール燃料電池は、DMFCと称し、これは、電気化学的なエネルギー変換器の一般的な基本原理のように、アノード、カソード及び適当な電解質からなる。電極は、電流コレクタによって一般に裏側に、すなわち電解質から離れた方の側に接触し、この電流コレクタは、そのためにガス又は反応物質分散の役割を有する。利用された電解質の種類によって引きこされ、DMFCを実現する種々の可能性が与えられる。本発明の枠内において有利な酸性電解質、及びその際にとくに酸性固体電解質が取扱われる。その

際、一般にプロトン伝導ポリマー（電解質—ダイヤフラム）が適当であり、これらのポリマーは、相応する動作条件において安定である。例として、ナフィオン（Nafion）（登録商標）を挙げておく。前記のもの以外にその他の電解質として、なおりん酸すず又はシロキサン骨格に基付く電解質のような無機システムに基付くものを挙げておく。

電流コレクタとして、炭素ベースの通常材料、例えば炭素繊維紙又は織物が使用される。触媒として、アノード側に、優先的に白金／ルテニウム合金が利用され、カソード側に、ほとんどの場合白金が利用される。例えばバッテリーのような燃料電池装置を実現する際に、高い電圧を達成するために、この電池は、バイポーラに直列接続される。そのために必要なバイポーラ板は、グラファイト、金属又はその他の電気的に導通するかつ耐食性の材料からなることができる。バイポーラ板は、同時に反応物質供給の役割を引受ける。それ故にこれらは、場合によっては適当な通路を有するように構成されている。

DMFCの動作は、混合物の沸点に応じて、60と160℃の間の温度において行なうことができる。有利に動作温度は、100ないし150℃の範囲にあり、典型的にはこれは、120と130℃の間にある。それに相応してメタノール

又は適当なメタノール／水混合物は、沸騰温度以上に加熱され、かつ電池にガス状にして供給される。その際、システム圧力は、これが、燃料電池の温度におけるメタノール／水混合物の平衡圧力に相当するように調節される。それ故にDMFCのアノード空間内において蒸気は、飽和の状態で存在する。反応物質のこの蒸気状の供給により、アノードにおける水の量が大幅に減少するので、電気浸透の水送りは最少になる。概念“燃料”、“メタノール”及び“水とメタノールからなる混合物”は、本出願の枠内において、常に未確定の量の不活性ガス（したがって0%からほぼ100%の湿度までの）を含む蒸気状の燃料を表わしている。不活性ガスとしてCO<sub>2</sub>の場合、ポンプ及び相応する制御弁を介して再び必要な過圧にされ（図2参照）かつ循環路内に通されるアノード排気ガスの一部を問題にすることができる。

燃料として、前記のように、不活性ガス添加物を含む又は含まないメタノール／水混合物又は純粋なメタノールが利用されるが、その他の水溶性の有機分子の電気化学的な酸化可能性が技術的に有利であることが判明する場合には、本発明はこれに限定されるものではない。燃料は、前記のように、燃料電池の排気ガス導管に接続された二酸化炭素一分離器を介して、循環路内において案内され、この二酸化炭素一分離器は、同時に、生じた二酸化炭素を残りの排気ガスから分離するという機能を有する。

純粋な酸素又は空気又はこれらの成分の任意の混合

物が、酸化剤とみなされ、その際、酸化剤は、有利に化学量論を越える量にしてカソードに供給される。

DMFCの特殊な問題は、燃料の酸化のための適当なアノード材料の搜索である。それ故に前記の白金／ルテニウム合金の他に、研究レベルに応じて種々のアノード材料、及びアノードにおける触媒が、本発明により使用できる。例としてなお場合によってはすず又はニッケルのような第3の成分を合金添加することによって、2元系、白金／ルテニウムに対してアノードの活性度をさらに容易に改善することができることを述べておく。本発明は、触媒及びアノード材料又は



カソード材料として貴金属に限定されるものではなく、貴金属を含まない触媒もまったく考えることができる。

蒸発していない液状の状態に関して燃料混合物中におけるメタノールの濃度は、0.05と5モル／1の間であることができる。その際、0.5と1.5モル／1の間の濃度は、とくに有利である。

別の動作パラメータとして、なお通常の圧力とわずかな過圧及び負圧との間にあることができる圧力を挙げておく。前の定義は、明細書、図面の説明及び請求の範囲に当てはまる。

次に本発明を、なお2つの図により詳細に説明する。

図1は、本発明による燃料電池装置のブロック回路

図を示す。

図2は、同様に本発明による燃料電池装置のブロック回路図を示すが、ここでは燃料は、燃料電池に接続されたCO<sub>2</sub>一分離器を介して循環路内に通される。

図1は、燃料電池装置を示しており、この燃料電池装置は、燃料としてメタノール／水混合物でも、純粋なメタノールでも動作させることができる。装置は、計量ポンプ3及び3'を有し、これらの計量ポンプは、制御システムを介してメタノール又は／及び水の供給を制御する。左から右へ進んで、図1は、まず両方の容器1及び2を示し、これらの容器内に水及びメタノールが含まれている。これらの貯蔵容器1及び2から液状燃料の成分、したがって水及びメタノールは、それぞれ液体の流速を制御する計量ポンプ3及び3'内に流入する。例えば水容器である貯蔵容器1の場合、導管11を介して蒸発器4に、負荷に依存して計量ポンプ3において測定された量の水が到達する。同様に所定の量のメタノールは、貯蔵容器2から計量ポンプ3'及び導管12を介して同じ蒸発器4に到達する。蒸発器4において両方の液体は、沸点より上に加熱され、かつ導管13を介して、蒸発器4内において生じた蒸気混合物が、燃料電池積層体5に導入される。ここにおいてこれは、供給通路を介して個々の燃料電池のそれぞれのアノード空間内に導かれる。導管15を介して消費されかつCO<sub>2</sub>を濃厚化された燃料排気

ガスは、燃料電池積層体から再び出て、かつ二酸化酸素一分離器又は熱交換器6に到達し、ここにおいてこれは、熱エネルギーを使用して場合によっては再び凝縮される。生じたCO<sub>2</sub>は、ここにおいて排気ガス/凝縮物から分離することができる。燃料電池は、カソード側に酸化剤を供給される。酸化剤排気ガスは、導管16を介して再び電池積層体から出て、かつ熱交換器7に導かれる。

図2は、本発明による燃料電池装置の同様なブロック回路図を示しているが、燃料電池積層体からの燃料-排気ガス導管に接続された熱交換器又は二酸化炭素一分離器6が、導管8を介して蒸発器4に接続されている点において相違点を有する。この時、導管8を介して、熱交換器又は二酸化炭素一分離器6において場合によっては凝縮された又は冷却された燃料排気ガスは、再び蒸発器4に到達し、ここにおいてこれは、導管13を介して改めて燃料電池に供給される。第2の導管18を介して、分離されたCO<sub>2</sub>は、熱交換器6から同様に蒸発器4に導かれる。導管18内にポンプ19があり、このポンプによってCO<sub>2</sub>は、再び必要な過圧にされる。

燃料混合物の組成は、前記のように、燃料電池積層体のその都度の負荷、及び湿度の設定値に従う。目標値として水/メタノール濃度に負荷にしたがって与えられた設定値を導管13内に与えられる混合物の実際

値と比較する制御機構を介して、計量ポンプ3及び3'の出力が調節される。同様に不活性ガスの添加は、実際値としての導管13内の湿度を目標値としての所定の湿度と比較する制御機構を介して管理される。したがって本発明のこの構成は、ファラデー効率の最適化を可能にする。

燃料電池装置、とくに本発明による燃料電池からなるバッテリーは、従来の技術に対して著しく高められた電圧-及びファラデー効率で動作する。追加的に反応物質の蒸気状の存在によって、カソードの“洪水”[“洪水になる”とは、メタノール及び水もカソードの作業層に達し、かつガス送り孔の疎水性を低下するので、これらが、反応水で満たされる(=“洪水になる”)ということを表わしている。それにより酸素の送りが妨げられ、かつ電池電圧が下落する。]が阻止され、かつ少なくともかなりの程度まで抑圧される。

その際、ファラデー効率の上昇は、主としてダイヤフラムを通るメタノール拡散の最少化によって達成される。負荷に依存して制御される計量ポンプ3を介して、それぞれ瞬時動作状態において燃料電池積層体によって必要な程度のメタノールだけしか蒸発器4において蒸発しない。その際、“燃料の必要量”とは、反応のファラデーの当量及び動作条件によって起こされる有利に過剰に存在するバンド幅によって確定する負荷に依存した目標値のことである。メタノールの

濃度は、このようにアノードにおいて負荷の交代に追従して可変に調節可能であり、かつ拡散限界電流の最適に近い（すなわち電圧／電流－線図における特性曲線に沿ってまだ最大の出力を有するが、拡散限界電流に近い）状態において、極端な動作パラメータ（スタンドバイ及び全負荷）にも設定することができる。ガス混合物中におけるメタノール濃度の変化は、水供給又は圧力を介して制御する必要はなく、これは、明らかに不活性担体ガスの添加を介しても制御することができる。

計量ポンプの調節のために、電池内において支配的なメタノール又は燃料濃度の実際値の特別な測定を行なう必要はない。なぜなら計量ポンプは、負荷に依存して調節可能であり、かつメタノールの消費量は、したがって戻された排気ガス中にまだ含まれる量は、電流経過を介して計算することができるからである。

しかしガス状燃料混合物中におけるメタノール濃度の実際値の追加的な管理－確認は、例えば蒸発器から燃料積層体への導管13内又は蒸発器自体において行なうことができる。蒸発器において確認が行なわれる場合、寸法に関して蒸発器の容器は、考えることができるあらゆる動作状態において完全な蒸発が保証されており、したがって凝縮物による濃度の変化が生じないように、選定しなければならない。しかしながら通

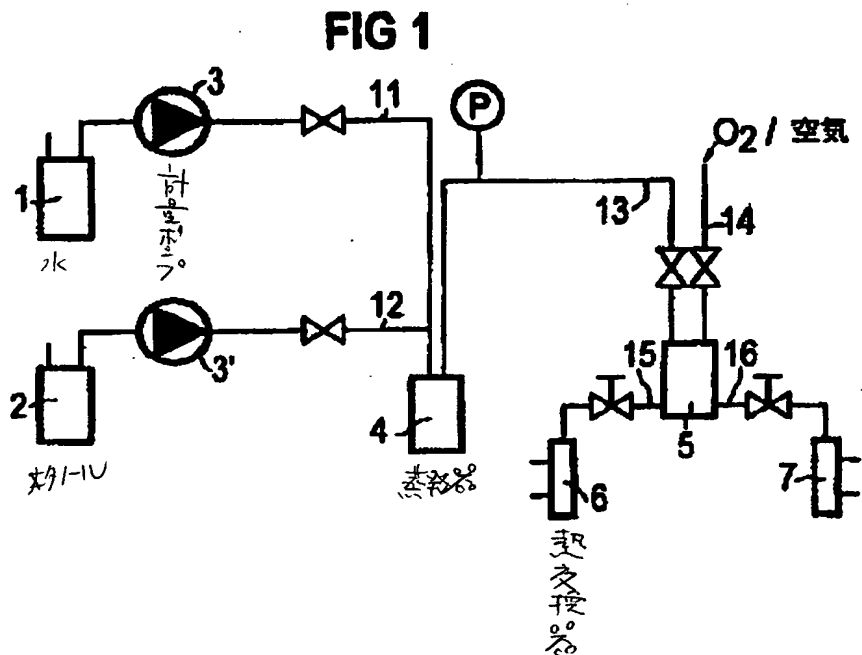
常の場合、水－メタノール混合比の管理－確認は、とにかくこの時、できるだけ燃料電池積層体の供給通路への直接の供給導管において行なわれる。

本発明によれば、水がアノード側において供給され、かつ前記の従来の技術の

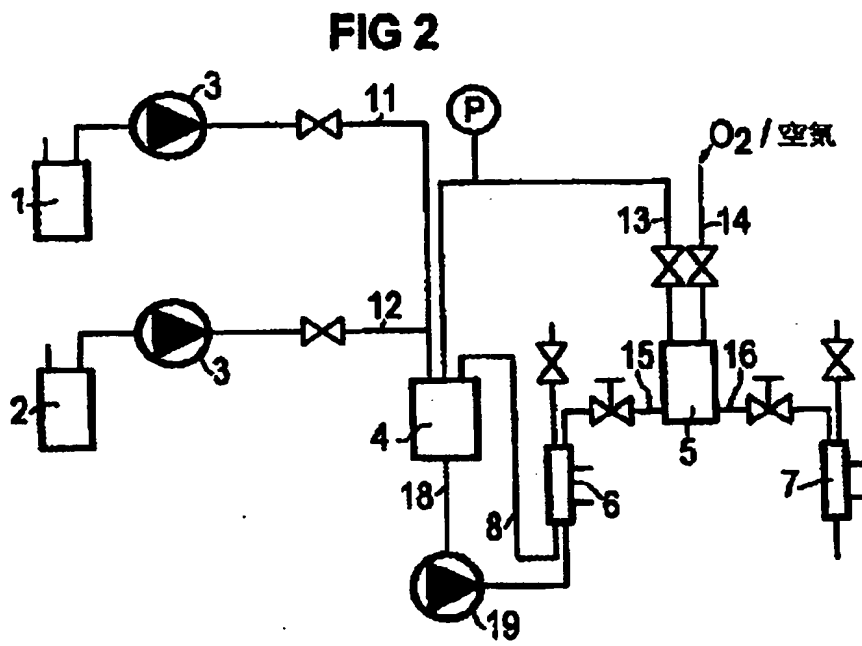
ようにカソード側において供給されないことによって、電池の簡単な構成が実現される。

本発明による燃料電池からなるバッテリーは、とりわけ例えば自動車におけるように、移動のエネルギー供給に使用するために考えることができる。しかしこれは、例えば発電所のように、大きな定置のエネルギー供給設備においても、又は住宅又は商業建築物に電流及び熱を供給するためにも考えることができる。

【図1】



【図2】



【国際調査報告】

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Int. Adonal Application No

PCT/DE 97/01320

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 6 H01M8/10 H01M8/04

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 6 H01M

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	SHUKIA A K ET AL: "VAPOUR-FEED DIRECT-METHANOL FUEL CELL WITH PROTON-EXCHANGE MEMBRANE ELECTROLYTE" JOURNAL OF POWER SOURCES, vol. 55, no. 1, 1 May 1995, pages 87-91, XP000541735 see page 88, left-hand column, last paragraph - right-hand column, paragraph 1; figure 1 see page 89, left-hand column, last paragraph - right-hand column, line 2 see page 88, left-hand column, line 3 - line 14  -/--	1, 2, 4-7

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.☒ Patent family members are listed in annex.

## \* Special categories of cited documents:

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubt on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"A" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

5 November 1997

Date of mailing of the international search report

24/11/1997

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentamt 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 351 epo nl,  
Fax (+31-70) 340-3016

Authorized officer

D'hondt, J

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No.

PCT/DE 97/01320

## C. (Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 013, no. 038 (E-709), 27 January 1989 & JP 63 237363 A (HITACHI LTD), 3 October 1988, see abstract & CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 110, no. 12, 20 March 1989 Columbus, Ohio, US; abstract no. 98862, see abstract	1,6
X	V.M. SCHMIDT ET AL: "DEMS AND SINGLE CELL MEASUREMENTS OF A DIRECT METHANOL FUEL CELL" PROCEEDINGS OF THE FIRST INTERNATIONAL SYMPOSIUM ON PROTON CONDUCTING MEMBRANE FUEL CELLS I - THE ELECTROCHEMICAL SOCIETY, vol. 95, no. 23, 1995, PENNINGTON, pages 267-277, XP002044890 see page 267, last paragraph - page 268, paragraph 1; figures 1,2	1,6
X	REN X ET AL: "HIGH PERFORMANCE DIRECT METHANOL POLYMER ELECTROLYTE FUEL CELLS" JOURNAL OF THE ELECTROCHEMICAL SOCIETY, vol. 143, no. 1, 1 January 1996, pages L12-L15, XP000556203 see page L14, left-hand column, paragraph 2	1,6
X	US 5 523 177 A (KOSEK JOHN A ET AL) 4 June 1996 see abstract see column 1, line 61 - column 2, line 3 see column 5, line 63 - column 6, line 12 see example 4	6
A		1
X	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 014, no. 546 (E-100B), 4 December 1990 & JP 02 234359 A (NIPPON SOKEN INC), 17 September 1990, cited in the application see abstract	6

-/--

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

 II. Additional Application No.  
 PCT/DE 97/01320

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 014, no. 546 (E-1008), 4 December 1990 & JP 02 234358 A (NIPPON SOKEN INC), 17 September 1990, see abstract & CHEMICAL ABSTRACTS, vol. 115, no. 18, 4 November 1991 Columbus, Ohio, US; abstract no. 186706, see abstract	6
P,X	K.SCOTT ET AL: "Performance and modelling of a direct methanol solid polymer electrolyte fuel cell" JOURNAL OF POWER SOURCES., vol. 65, no. 1-2, March 1997, LAUSANNE CH, pages 159-171, XP002044891 see page 160, right-hand column, paragraph 3; figure 4 see page 168, left-hand column, line 12 - line 14 see page 168, left-hand column, line 17 - line 18 see page 168, left-hand column, line 30 - line 31	1,3,6,8
P,X	A.S. ARICO ET AL: "Analysis of the Electrochemical Characteristics of a direct Methanol Fuel Cell based on a PtRu/C Anode Catalyst" JOURNAL OF THE ELECTROCHEMICAL SOCIETY, vol. 143, no. 12, December 1996, MANCHESTER, NEW HAMPSHIRE US, pages 3950-3959, XP002044892 see page 3951, left-hand column, paragraph 4 - right-hand column, paragraph 1	1,6
A	EP 0 072 038 A (HITACHI LTD) 16 February 1983 see claims 4,5; figure 2	3



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No  
PCT/DE 97/01320

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 5523177 A	04-06-96	NONE	
EP 0072038 A	16-02-83	JP 58028175 A	19-02-83

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**